Method for increasing the bulk weight of silicon dioxide

Patent Number:

□ US4326852

Publication date:

1982-04-27

Inventor(s):

KRATEL GUENTER; DUMMER GERHARD; NIESSNER PETER; GRUNE BURKHARD;

STOHR GUENTER

Applicant(s):

WACKER CHEMIE GMBH

Requested Patent: FEP0010655, B1

Application

Number:

US19790083718 19791011

Priority Number (s):

DE19782844459 19781012

IPC Classification: B01D29/20; B01D37/00; B01D46/26; B01J3/00

EC Classification: C08K3/36, C09C1/30D4, C10M113/12

Equivalents:

AU5168579, AU525715, CA1139082, DE2844459, JP1190991C, JP55051714,

JP58023330B

Abstract

A method for increasing the bulk weight of silicon dioxide with a surface of at least 50m2/g by means of subatmospheric pressure applied at a filter face, wherein the silicon dioxide is moved by means of a conveyor screw, whose longitudinal axis is arranged parallel with respect to the filter face and which preferably has a decreasing thread pitch in feeding direction. Furthermore, the invention relates to the use of the treated silicon dioxide as a filler material for polymeric masses, especially diorganopolysiloxane, which is storeable in the absence of water and when admixed with water at room temperature results in a hardened elastomer mass.

Data supplied from the esp@cenet database - 12

(1) Veröffentlichungsnummer:

0 010 655

	_
U	121

EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

- Anmeldenummer: 79103880.5
- Anmeldetag: 10.10.79

(f) Int. Cl.3: C 01 B 33/18, B 01 J 20/10, C 08 K 3/36, C 09 C 1/30

Priorität: 12.10.78 DE 2844459

- Anmelder: WACKER-CHEMIE GMBH, Prinzregentenstrasse 22, D-8000 München 22 (DE)
- Veröffentlichungstag der Anmeldung: 14.05.80 Patentblatt 80/10
- Erfinder: Kratel, Günter, Dr. Dipi.-Chem., Alpenblickstrasse 10, D-8961 Durach-Bechen (DE) Erfinder: Dummer, Gerhard, Dipl.-ing., Alzweg 9, D-8261 Burgkirchen/Alz (DE) Erfinder: Niessner, Peter, Bahnhofstrasse 2, D-8961

Sulzberg (DE)

Erfinder: Grune, Burkhard, Bachstrasse 14, D-8263

Burghausen (DE)

Erfinder: Stohr, Günter, Dr. Dipl.-Chem.,

Stulbenstrasse 14, D-8961 Durach-Bechen (DE)

- Benannte Vertragsstaaten: BE DE FR GB IT NL SE
- Verfahren zum Erhöhen des Schüttgewichts von Siliciumdioxyd und eine Verwendung des erfindungsgemäss behandelten Siliciumdioxyds.
- 5 Die Erfindung betrifft ein Verfahren zum Erhöhen des Schüttgewichts von Siliciumdioxyd mit einer Oberfläche von mindestens 50 m²/g mlttels Unterdruck an einer Filterfläche. Erfindungsgemäß wird das Siliciumdioxyd, dessen Schüttgewicht erhöht werden soll, unter Bewegung dieses Siliciumdioxyds mittels einer Transportschnecke, deren Längsachse parallel zur Filterfläche angeordnet Ist und die vorzugsweise eine In Förderrichtung abnehmende Gewindesteigung hat, dem Unterdruck ausgesetzt. Welterhin betrifft die Erfindung die Verwendung von erfindungsgemäß behandeltem Siliciumdioxyd als Füllstoff in bei Abwesenheit von Wasser lagerfähigen, bei Zutritt von Wasser bei Raumtemperatur zu Elastomeren hartbaren Massen auf Grundlage von Diorganopolysiloxan.

- 1 -

MACKER-CHEMIE

München, den 10.0ktober 1978 LC-PAT/Dr.Da/Dr.Ru/He

Wa 7839-1

Verfahren zum Erhöhen des Schüttgewichts von Siliciumdioxyd und eine Verwendung des erfindungsgemäß behandelten Siliciumdioxyds

Es ist bereits bekannt, das Schüttgewicht von Siliciumdioxyd mit einer Oberfläche von z.B. 250 m²/o mittels Unterdruck an gasdurchlässiger Fläche, wobei zu den gasdurchlässigen Flächen auch Filterflächen gehören, zu erhöhen. Hierzu wird z.B. auf DE-PS 11 29 459, ausgegeben 29. August 1963, Deutsche Gold- und Silber- Scheideanstalt, vormals Roessler, verwiesen. Gegenüber den vorbekannten Verfahren zum Erhöhen des Schüttgewichts von Siliciumdiaxyd mit einer Oberfläche von mindestens 50 m²/a hat das erfindungsgemäße Verfahren insbesondere die Vorteile, daß das danach behandelte Siliciumdioxyd ein noch geringeres Volumen hat und/oder beim Endverbraucher keine oder geringere Verluste und physiologische Belästigung durch Staubentwicklung aus dem Siliciumdioxyd entstehen, ohne daß durch das erfindungsgemäße Verfahren die Struktur des Siliciumdioxyds in nachteiliger Weise verändert wird, und/oder daß das erfindungsgemäß behandelte Siliciumdioxyd als Füllstoff in polymeren Massen rascher in diese Massen eingearbeitet werden kann und ihnen stärkere Thixotropie und höhere Standfestigkeit und den aus diesen Massen hergestellten Formkörpern und Überzügen glattere Oberflächen und besonders hohe Weiterreißfestigkeit verleiht.

Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zum Erhöhen des Schüttgewichts von Siliciumdioxyd mit einer Oberfläche von mindestens $50~\text{m}^2/\text{g}$ mittels Unterdruck an einer Filterfläche, d a d u r c h g e k e n n z e i c h-n e t , daß das Siliciumdioxyd, dessen Schüttgewicht erhöht werden soll, unter Bewegung dieses Siliciumdioxyds mittels einer Transportschnecke, deren Längsachse parallel zur Filterfläche angeordnet ist, dem Unterdruck ausgesetzt wird.

Die hier in der Beschreibung und mindestens einem der Patentansprüche angegebenen Werte der Oberfläche des erfindungsgemäß zu behandelnden Siliciumdioxyds sind jeweils bestimmt durch Stickstoffadsorbtion nach der im
ASTM Special Technical Publication Nr. 51, 1941, Seite 95 ff, beschrieben
und meist als "BET" bezeichneten Methode, also BET-Werte.

Als Siliciumdioxyd mit einer Oberfläche von mindestens 50 m²/g ist pyrogen erzeugtes Siliciumdioxyd (in der angelsächsischen Literatur meist als "fume silica" oder "pyrogenic silica" bezeichnet;) bevorzugt. Solches Siliciumdioxyd kann z.8. durch Hydrolyse von Siliciumtetrachlorid und/oder Methyltrichlorsilan bei Temperaturen über 800° C hergestellt werden. Weitere Beispiele für Siliciumdioxyd mit einer Oberfläche von mindestens 50 m²/g sind unter Erhaltung der Struktur entwässerte Kieselsäuregele (sogenannte "Aerogele"), Xerogele und anderes naßgefälltes Siliciumdioxyd mit einer Oberfläche von mindestens 50 m²/q.

Die Oberfläche des Siliciumdioxyds mit einer Oberfläche von mindestens 50 m²/g kann, bevor dieses Siliciumdioxyd bei dem erfindungsgemäßen Verfahren eingesetzt wird, z.B. durch Umsetzung mit Organosiliciumverbindungen, wie Trimethyläthoxysilan, Alkoholen oder Fettsäuren, hydrophobiert oder in anderer Weise, z.B. durch Umsetzung mit Siliciumtetrachlorid oder Aminen bzw. Aminoalkoholen, oder thermischer Entfernung von Si-gebundenen Hydroxylgruppen, verändert worden sein.

Falls erwünscht, können Gemische aus verschiedenen Siliciumdioxydarten bei dem erfindungsgemäßen Verfahren eingesetzt werden.

Vorzugsweise hat das bei dem erfindungsgemäßen Verfahren eingesetzte Siliciumdioxyd ein Schüttgewicht (bestimmt gemäß DIN/Deutsche Industrie Norm 53 468) von 10 bis 30 g/l und eine Oberfläche von höchstens $400 \text{ m}^2/\text{g}$, insbesondere eine Oberfläche von 100 bis 300 m $^2/\text{g}$.

Bei dem erfindungsgemäßen Verfahren wird zumindest in Richtung auf die Filterfläche und vorzugsweise auch in anderen Richtungen oder anschliessend an das erfindungsgemäße Verfahren keinerlei oder wenigstens praktisch kein Druck durch eine mechanische Vorrichtung auf das Siliciumdioxyd ausgeübt. Durch die Transportschnecke, deren Längsachse parallel zur Filterfläche angeordnet ist, wird das erfindungsgemäß eingesetzte Siliciumdioxyd, vielmehr lediglich an die Filterfläche drucklos oder praktisch drucklos herangeführt, Gas, das in offenen Hohlräumen der Siliciumdioxydteilchen und zwischen diesen Teilchen enthalten ist, durch die Filterfläche mittels des Unterdrucks abgesaugt, das Siliciumdioxyd wieder von der Filterfläche weggeführt sowie durchmischt und nach meist nochmaliger Wiederholung dieses Heran- und Wegführens sowie Durchmischens endgültig von der Filterfläche entfernt.

Vorzugsweise hat die Transportschnecke eine in Förderrichtung abnehmende Gewindesteigung.

Die bei dem erfindungsgemäßen Verfahren verwendete Filterfläche kann aus beliebigem Material bestehen, aus dem auch bisher Filterflächen bestehen konnten, an denen staubförmige Güter von Gasen getrennt wurden, beispielsweise aus Gewebe aus natürlichen oder synthetischen, organischen oder anorganischen Fasern, die ggf. durch thermische oder chemische Behandlung modifiziert sein können, oder aus poröser Keramik, insbesondere aber aus Sintermetall.

Vorzugsweise hat die Filterfläche die Form eines Rohres, in dem sich die Transportschnecke dreht und das sich in einer abgeschlossenen Kammer befindet, die mit einer Vakuumpumpe verbunden ist.

Der bei dem erfindungsgemäßen Verfahren angewendete Druck, also der Unterdruck, dem das Siliciumdioxyd mit einer Oberfläche von mindestens 50 m²/g bei dem erfindungsgemäßen Verfahren ausgesetzt wird, beträgt vorzugsweise 300 bis 900 mbar (abs.).

Das erfindungsgemäße Verfahren wird vorzugsweise bei Raumtemperatur, also bei 18° bis 25° C, durchgeführt. Falls erwünscht, kann es aber auch bei niedrigeren oder höheren Temperaturen, z.8. bei 100° bis 250° C, durchgeführt werden. Der Durchsatz beträgt vorzugsweise 200 bis 350 kg je Stunde und m² Filterfläche.

Vorzugsweise verläßt das Siliciumdioxyd am Ende der Transportschnecke die Vorrichtung durch eine Austrittsöffnung, deren Durchmesser veränder-lich ist. Durch Verringerung des Durchmessers der Austrittsöffnung ist eine zusätzliche Erhöhung des Schüttgewichts möglich.

Vorzugsweise wird das Schüttgewicht des Siliciumdioxyds durch das erfindungsgemäße Verfahren auf 80 bis 120 g/l erhöht.

Nach dem erfindungsgemäßen Erhöhen des Schüttgewichts kann das Siliciumdioxyd in üblicher Weise abgepackt werden. Vorzugsweise wird auch bei diesem Abpacken Unterdruck, insbesondere intermittierender Unterdruck, angewandt.

Das nach dem erfindungsgemäßen Verfahren behandelte Siliciumdioxyd mit einer Oberfläche von mindestens 50 m²/g kann überall verwendet werden, wo auch bisher Siliciumdioxyd mit einer Oberfläche von mindestens 50 m²/g verwendet werden konnte. Beispiele für derartige Verwendungen sind die Verwendung als die Rieselfähigkeit von pulverförmigen Stoffen erhöhender Zusatz, als Verdickungsmittel von polaren und unpolaren Flüssigkeiten einschließlich Schmiermitteln.und die Verwendung als Füllstoff in polymeren Massen für die Herstellung von Formkörpern und Überzügen und die Füllung von Leerräumen, einschließlich Dichtungen. Bei diesen polymeren Massen kann es sich z.8. um solche auf Grundlage von Organopolysiloxan, Massen auf Grundlage von natürlichem oder synthetischem rein-organischem Kautschuk, Polymerisate oder Mischpolymerisate von Vinylchlorid, Vinylazetat, Styrol und/oder Äthylen oder Polyester oder z.8. um in Abwesen– heit von Wasser lagerfähige, bei Zutritt von Wasser bei Raumtemperatur härtende Massen auf Grundlage von Polyurethanvorpolymeren oder Polysulfidvorpolymeren handeln.

Bei Massen auf Grundlage von Organopolysiloxanen kann es sich um solche handeln, die zu Elestomeren oder zu harzartigen Produkten härten. Diese Massen auf Grundlage von Organopolysiloxan können solche sein, die in der Hitze, meist bei Temperaturen über 100° C durch Kondensation oder Radikalbildung, härten oder vernetzen, oder solche sein, die als sogenannte "Zweikomponentensysteme" oder als sogenannte "Einkomponentensysteme" bei Raumtemperatur vernetzen oder härten, oder solche sein, die durch die Anlagerung von Si-gebundenem Wasserstoff an aliphatische Mehrfachbindung in Gegerwart von diese Anlagerung förderndem Katalysator, wie Platinverbindung, härten oder vernetzen.

Erfindungsgemäß behandeltes Siliciumdioxyd kann in die polymeren Massen auf die gleiche Weise, jedoch meist in kürzerer Zeit, und in den gleichen Mengen wie bisher bekanntes Siliciumdioxyd mit einer Oberfläche von mindestens $50~\text{m}^2/\text{g}$, beispielsweise mittels einem Planetermischer, eingearbeitet werden.

Wie eingangs erwähnt, verleiht erfindungsgemäß behandeltes Siliciumdioxyd mit einer Oberfläche von mindestens 50 m²/g polymeren Massen besonders hohe Thixotropie und Standfestigkeit. Diese Eigenschaften sind
von besonders großer Bedeutung bei bei Abwesenheit von Wasser lagerfähigen, bei Zutritt von Wasser bei Raumtemperatur zu Elastomeren härtbaren
Massen auf Grundlage von Diorganopolysiloxan, also bei sogenannten Einkomponentensystemen, die vielfach zum Ausfüllen von Fugen, beispielsweise an Gebäuden, Land-, Wasser- oder Luftfahrzeugen verwendet werden. Deshalb ist Gegenstand der Erfindung auch die Verwendung von erfindungsgemäß behandeltem Siliciumdioxyd als Füllstoff in bei Abwesenheit von
Wasser lagerfähigen, bei Zutritt von Wasser bei Raumtemperatur zu Elastomeren härtbaren Massen auf Grundlage von Diorganopolysiloxan.

Beispiel 1

Pyrogen erzeugtes Siliciumdioxyd, das durch Hydrolyse von Methyltrichlorsilan bei einer Temperatur über 800^{0} C hergestellt wurde, mit einer Oberfläche von 174 m 2 /g und einem Schüttgewicht von 17 g/l wird unter Sewegung dieses Siliciumdioxyds mittels einer Transportschnecke mit 40 Um-

drehungen je Minute, wobei der Durchmesser der Schnecke 300 mm beträgt und die Gewindesteigung dieser Schnecke entsprechend der Volumenabnahme des Siliciumdioxyds in Förderrichtung abnimmt, durch ein Rohr geführt. Dieses Rohr hat einen Durchmesser von 303 mm und ist auf einer Länge von 2000 mm als Doppelmantelgehäuse ausgeführt, dessen innerer Mantel aus einem Rohr aus Sintermetall mit einer Porenweite von 20 Mikrometer (V₂A Siperm R 20 – die Bezeichnung "Siperm" dürfte ein registriertes Warenzeichen sein – Thyssen Edelstahlwerke AG, Dortmund, ERD) besteht. Der Druck im Innenraum des Doppelmantelgehäuses beträgt 840 mbar (abs.). Das Siliciumdioxyd wird durch das Rohr in einer Menge von 400 kg je Stunde insgesamt oder 210 kg je Stunde und m² Filterfläche geführt. Nach dem Austritt aus dem Rohr durch eine Austrittsöffnung, deren Durchmesser mittels einer regelbaren Blende veränderlich ist, wobei die Blende auf einen Austrittsöffnungs-Durchmesser von 200 mm eingestellt ist, hat das Siliciumdioxyd ein Schüttgewicht von 87,5 g/l.

Eine andere, für die erfindungsgemäße Behandlung des Siliciumdioxyds verwendbare Vorrichtung ist in der Werbeschrift "GERIVAC (registriertes Warenzeichen)-Durchlauf-Verdichter (Entlüfter)" abgebildet.

Beispiel 2

Die im Beispiel 1 beschriebene Arbeitsweise wird wiederholt mit der Abänderung, daß die Oberfläche des Siliciumdioxyda vor der erfindungsgemäßen Behandlung mittels Trimethyläthoxysilan hydrophobiert wurde. Nach dem Austritt aus dem Rohr hat das Siliciumdioxyd ein Schüttgewicht von 93,0 g/l.

Beispiel 3

Mit einem Planetermischer werden unter Unterdruck und Ausschluß von Wasser die folgenden Bestandteile in der Reihenfolge, in der sie angegeben sind, vermischt:

- 670 g in den endständigen Einheiten je eine Si-gebundene Hydroxylgruppe enthaltendes Dimethylpolysiloxan mit einer Viskosität von etwa 75 Pa•s.
- 200 g durch Trimethylsiloxygruppen entblockiertes Dimethylpolysiloxan mit einer Viskosität von 100 mm 2 . s⁻¹.
- . 45 g Methyltriacetoxysilan,
- 85 g des gemäß Beispiel 1 behandelten Siliciumdioxyds und
- 10 q Dibutylzinndilaurat

Der Gesamt zeitbedarf für dieses Vermischen beträgt 30 Minuten, wobei auf das Einmischen des Siliciumdioxyds nur 50 Sekunden entfallen. Es wird eine bei Abwesenheit von Wasser lagerfähige, bei Zutritt von Wasser bei Raumtemperatur zu einem Elastomeren härtende Masse erhalten. Diese Masse ist standfest, was sich daraus ergibt, daß sie aus einer senkrechten Schiene nicht abläuft, und ergibt Elastomere mit glatter Oberfläche.

Beispiel 4

Die in Beispiel 3 beschriebene Arbeitsweise wird wiederholt mit der Abänderung, daß anstelle der 85 g des gemäß Beispiel 1 behandelten Siliciumdioxyds 120 g des gemäß Beispiel 2 behandelten Siliciumdioxyds verwendet werden. Auf das Einmischen des Siliciumdioxyds entfallen nur 70 Sekunden.

Vergleichsverauch 1

Die in Bewennel 3 beschwiehene Arbeitsweise wird wiederholt mit der Ab-Und im geschied wie auf State was der eigen die bildichten eine die wir



Beispiel 1 beschriebene Behandlung verwendet wird. Das Einmischen des Siliciumdioxyds benötigt 2,5 Minuten.

Vergleichsversuch 2

Die in Beispiel 4 angegebene Arbeitsweise wird wiederholt mit der Abänderung, daß das gemäß Beispiel 2 eingesetzte Siliciumdioxyd ohne die in Beispiel 2 angegebene Behandlung verwendet wird. Das Einmischen des Siliciumdioxyds benötigt 7 Minuten.

Vergleichsversuch 3

Die in Beispiel 3 angegebene Arbeitsweise wird wiederholt mit der Abänderung, daß anstelle der 85 g des gemäß Beispiel 1 behandelten Siliciumdioxyds (pH = Wert : 4,2) 85 g eines pyrogen erzeugten und gepressten Siliciumdioxyds mit einer Oberfläche von 152 m²/g, einem Schüttgewicht von 120 g/l und einem pH-Wert von 4,15 verwendet werden. Auf das Einmischen des Siliciumdioxyds entfallen zwar sogar nur 45 Sekunden. Die Masse ist jedoch nicht standfest und ergibt Elastomere mit rauher Oberfläche und einer Weiterreißfestigkeit von nur 2,8 N/mm, während Elastomere aus der Masse gemäß Beispiel 3 eine Weiterreißfestigkeit von 4,2 N/mm haben.

Patentansprüche-

- 1. Verfahren zum Erhöhen des Schüttgewichts von Siliciumdioxyd mit einer Oberfläche von mindestens 50 m²/g mittels Unterdruck an einer Filterfläche, dad urch gekennzeich net, daß das Siliciumdioxyd, dessen Schüttgewicht erhöht werden soll, unter Bewegung dieses Siliciumdioxyds mittels einer Transportschnecke, deren Längsachse parallel zur Filterfläche angeordnet ist, dem Unterdruck ausgesetzt wird.
- Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß als Transportschnecke eine solche mit in Förderrichtung abnehmender Gewindesteigung verwendet wird.
- 3. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß als Filterfläche eine solche verwendet wird, die die Form eines Rohres hat, in dem sich die Transportschnecke dreht und das sich in einer abgeschlossenen Kammer befindet, die mit einer Vakuumpumpe verbunden ist.
- 4. Verfahren nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Filterfläche aus Sintermetall besteht.
- 5. Verfahren nach mindestens einem der Ansprüche 1, 2, 3 oder 4, da durch gekennzeichnet, daß das Siliciumdioxyd am Ende der Transportschnecke die Vorrichtung durch eine Austritts-öffnung verläßt, deren Durchmesser veränderlich ist.
- 6. Verwendung von gemäß mindestens einem der Ansprüche 1 bis 5 hergestelltem Siliciumdioxyd als Füllstoff in bei Abwesenheit von Wasser lagerfähigen, bei Zutritt von Wasser bei Raumtemperatur zu Elastomeren härtbaren Massen auf Grundlage von Diorganopolysiloxan.



EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

EP 79 103 880.5

				EP 79 103 880.5
EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE			KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int.CI.3)	
Kategoria	Kennzeichnung des Dokument maßgeblichen Teile	mit Angabe, soweit erforderlich, der	betrifft Anspruch	
X	Nr. 4, 1974, Augs	TTE - WACHSE, Band 100, burg enverminderung von	1,3	C 01 B 33/18 B 01 J 20/10 C 08 K 3/36
	Schüttgütern beim eines Durchlaufve Seiten 101 bis 10			C 09 C 1/30
X	DE - A - 1 908 41 * Ansprüche 1, 3	-	1-3	RECHERCHIERTE
	DE - A - 1 592 94 * Fig. 2 mit Besch	2 (PPG INDUSTRIES) reibung Seite 5 *	1,2	B 01 D 19/00
	DE - A1 - 2 434 18	32 (W.A. ALESCHIN	4	B 01 J 20/00 C 01 B 33/00
	et al.) * Beispiele 1 bis			C 08 K 3/00 C 08 K 9/00
	AND MANUFACTUR		.	C 09 C 1/00 C 09 C 3/00 F 26 B 17/20
	* Seite 3, Zeilen DE - A1 - 2 628 97 * Ansprüche 4 und	<u>'5</u> (DEGUSSA)	6	KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE X: von besonderer Bedeutung A: technologischer Hintergrund
A	DE - C - 893 497 ((DEGUSSA)		O: nichtschriftliche Offenbarung P: Zwischentiteratur T: der Erfindung zugrunde
A	DE - A1 - 2 724 97	(RHONE-POULENC)		liegende Theorien oder Grundsätze E: kollidierende Anmeldung
A	<u>DE - B - 2 344 388</u> WERK KEMPTEN)	(ELEKTROSCHMELZ-		D: In der Anmeldung angeführtes Dokument L: aus andern Gründen angeführtes Dokument &: Mitglied der gleichen Patent-
λ	Der vorliegende Recherchenbe	richt wurde für alle Patentansprüche erstell	t.	familie. Übereinstimmendes Dokument
	oort // Berlin //	Noschlußdatum der Recherche 17-01-1980	Pr0fer	KESTEN



EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

0010655

EP 79 103 880.5 - Seite 2 -

<u> </u>			- Seite 2 -
	EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE	KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int.CLI)	
tegorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angsbe, sowelt erforderlich, der maßgeblichen Teile	betrifft Anspruch	
A	<u>DE - B - 1 168 874</u> (DEGUSSA)		
D	DE - C - 1 129 459 (DEGUSSA)		
Ì			
{			
{	•		
}			
			RECHERCHIERTE SACHGEBIETE (Int. CL1)
1	·		
}			
-			
ļ			
{			
1			
			!
Į			
1			
1			